



TUGAS AKHIR - SF 091321

**Sintesis Material Piezoelektrik Bebas Timbal
 $x(\text{K}_{0,5}, \text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3 - (1-x)(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$
Dengan Metode Reaksi Padat**

NAHARIATUL HIKMAH
NRP 1110 100 702

Dosen Pembimbing
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

JURUSAN FISIKA
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya 2014

“Halaman ini sengaja dikosongkan.”



FINAL PROJECT- SF 091321

**Synthesis Lead-free Piezoelectric
 $x(\text{K}_{0,5}, \text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3 - (1-x)(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$
By Solid State Reaction Methode**

NAHARIATUL HIKMAH
NRP 1110 100 702

Advisor
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Department Of Physics
Faculty Of Mathematics And Natural Science
Tenth Nopember Of Technology Institute
Surabaya 2014

“Halaman ini sengaja dikosongkan.”

LEMBAR PENGESAHAN

Sintesis Material Piezoelektrik Bebas Timbal
 $x(\text{K}_{0,5}, \text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3 - (1-x)(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$
Dengan Metode Reaksi Padat

TUGAS AKHIR

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat
Memperoleh Gelar Sarjana Sains
pada
Program Sarjana Jurusan Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember Surabaya

Oleh :
NAHARIATUL HIKMAH
NRP. 1110 100 702

Disetujui oleh Pembimbing Tugas akhir :

Prof. Dr. Suasmoro, DEA
NIP. 19550210 1980.1.001


(.....)

Surabaya, Juli 2014



KATA PENGANTAR

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ

Alhamdulillahirobbilalamin, segala puji bagi Allah yang telah memberikan segenap anugerah dan hidayah-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan Tugas Akhir ini dengan semaksimal mungkin. Tak lupa sholawat serta salam selalu terlimpahkan kepada Nabi agung Muhammad SAW. Yang hanya dengan bimbingan dan karuniaNya lah, penulis mampu menyelesaikan Tugas Akhir yang berjudul :

Sintesis Material Piezoelektrik Bebas Timbal $x(\text{K,Na})\text{NbO}_3$ - $(1-x)(\text{Ba,Ca})(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ dengan Metode Reaksi Padat

Penulis menyadari bahwa penyusunan tugas akhir ini tidak terlepas dari peran dan dukungan dari berbagai pihak, maka penulis mengucapkan terimakasih kepada:

1. Kedua orangtua yang senantiasa memberikan dukungan baik moral maupun spiritual, serta segenap keluarga besar yang selalu memberikan dukungan kepada penulis.
2. Bapak Prof. Dr. Suasmoro, DEA selaku dosen pembimbing yang selalumemberikanbimbingan, kritik, saran motivasi serta nasihat sehingga penulis dapat menyelesaikan Laporan Tugas Akhir.
3. Kementrian Agama Republik Indonesia, yang telah memberikan beasiswa selama menempuh masa perkuliahan melalui program PBSB (Program Beasiswa Santri Berprestasi).
4. Seluruh Staf Pengajar di Jurusan Fisika ITS.

5. Bapak Dr. Agus Zainal Arifin, S. Kom, M. Kom dan Bapak Darmaji selaku pembina CSS MoRA ITS dan guru ngaji selama di ITS.
6. Keluarga besar CSS MoRA ITS (Community of Santri Scholars of Ministry of Religion Affairs), sebagai keluarga pertama di ITS, khususnya angkatan 2010 (D'10).
7. Nur Amaliya Rohmah, sebagai *partner* yang sangat baik, yang telah bersama menjalani suka-duka dalam penelitian ini dari awal hingga akhir.
8. Budiana, S.Si, Dian Agustinawati dan Farah Aulia R., sebagai teman seperjuangan dalam kelompok penelitian bersama Prof. Suasmoro.
9. Sahabat, kakakserta adik-adik terbaik, Etik Ulfanita, Afwin Ulvia, Imro'atul Mufidah, Zid Latifataz Z., Nazidatul Inayah, Nur Mu'alifah, Naqibatun Nadliriyah, Maylita Martani, Umi Maslakah, Wahyuni Lestari, Churroh Childa M., yang selalu membantu, menemani belajar, memberikan saran, berpetualang dan belajar banyak hal.
10. Seluruh teman-teman Cosmic yang selalu bersama menjalani masa studi dari awal hingga akhir.
11. Dan masih banyak pihak-pihak lain yang tidak dapat disebutkan satu per satu.

Penulis menyadari masih terdapat banyak kekurangan dalam penyusunan Tugas Akhir ini. Untuk itu, kritik serta saran yang membangun sangat penulis harapkan untuk perbaikan ke depan.

Surabaya, Juli 2014

Penulis

**SINTESIS MATERIAL PIEZOELEKTRIK
BEBAS TIMBAL $x(\text{K}_{0,5}, \text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3-(1-x)$
 $(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$ DENGAN METODE
REAKSI PADAT**

Nama : Nahariatul Hikmah
NRP : 1110 100 702
Pembimbing : Prof. Dr. Suasgoro, DEA

Abstrak

Sintesis material piezoelektrik bebas timbal $x(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3-(1-x)(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$ telah dilakukan dengan metode reaksi padat. Sintesis dilakukan dengan menggunakan bahan karbonat sebagai raw material. Sintesis dilakukan dengan terlebih dahulu membuat KNN dan BCZT kemudian mencampurkan keduanya. Bahan-bahan tersebut dikarakterisasi menggunakan TGA-DTA, XRD dan dilatometri pada $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$. Dari hasil penelitian, diketahui bahwa material KNN dengan struktur perovskite tetragonal terbentuk pada temperatur 700°C dengan parameter kisi a : $3.9587\text{\AA} \pm 0,0022$; c : $4.0136\text{\AA} \pm 0,0022$. Material BCZT dengan struktur perovskite orthorombik terbentuk pada temperatur 1200°C dengan parameter kisi a : $5.2614\text{\AA} \pm 0,0088$; b : $5.8048\text{\AA} \pm 0,0044$; c : $7.9454\text{\AA} \pm 0,0035$. Material $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$ terbentuk dengan komposisi $x=80\text{ \%mol}$. Rekalsinasi material $0,8\text{KNN}-0,2\text{BCZT}$ pada temperatur 1250°C selama 1 jam mampu menghasilkan fasa tunggal

ABO₃ dengan A= K, Na, Ba dan Ca sedangkan B= Nb, Zr dan Ti.

Kata kunci: *Piezoelektrik, Metode Reaksi Padat Rekalsinasi, Perovskite, Struktur Kristal*

***SYNTHESIS LEAD-FREE PIEZOELECTRIC MATERIALS
 $x(\text{K}_{0,5}, \text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3-(1-x)(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$ BY SOLID
STATE REACTION METHODE***

Name : Nahariatul Hikmah
NRP : 1110100702
Advisor : Prof. Dr. Suasgoro, DEA

Abstract

Lead-free piezoelectric materials $x(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3-(1-x)(\text{Ba}_{0,5}, \text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}, \text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$ have been synthesized by solid state reaction method. Synthesis carried out by using carbonate as raw materials. KNN and BCZT synthesized prior separately then mix both of them. The materials characterized by TGA-DTA, XRD and Dilatometry for $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$. From result of this research, known that KNN material have an tetragonal perovskite crystal structure formed at 700°C with lattice parameters a : $3.9587\text{\AA} \pm 0,0022$; c : $4.0136\text{\AA} \pm 0,0022$. BCZT material formed at 1200°C with lattice parameters a : $5.2614\text{\AA} \pm 0,0088$; b : $5.8048\text{\AA} \pm 0,0044$; c : $7.9454\text{\AA} \pm 0,0035$. $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$ material formed at $x=80\text{ \%mol}$. Re-calcination for $0,8\text{KNN}-0,2\text{BCZT}$ material during an hour giving single phase at ABO_3 structure within $A= \text{K, Na, Ba and Ca}$ whereas $B= \text{Nb, Zr and Ti}$.

Key words: *Piezoelectric, Solid State Reaction, Re-calcination, Perovskite, Crystal Structures*



“Halaman ini sengaja dikosongkan.”

DAFTAR ISI

Bab	Halaman
Halaman Judul.....	i
Cover Page	iii
Lembar Pengesahan	v
Abstrak.....	vii
Abstract	ix
Kata Pengantar	xi
Daftar Isi	xiii
Daftar Gambar	xv
Daftar Tabel.....	xvii
Daftar Lampiran.....	xix
 BAB I PENDAHULUAN.....	 1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Masalah	1
1.3 Batasan Masalah.....	2
1.4 Tujuan Penelitian	2
1.5 Manfaat Penelitian.....	2
1.6 Sistematika.....	2
 BAB II TINJAUAN PUSTAKA	 3
2.1 Bahan Piezoelektrik.....	3
2.2 KNaNbO_3 (KNN)	4
2.3 BACaZrTiO_3 (BCZT)	6
2.4 Metode Reaksi Padat	7
2.5 Analisa Termal	8
2.6 Dilatometri	9
2.7 Difraksi Sinar-X	9
 BAB III METODOLOGI	 13

3.1 Alat dan Bahan.....	13
3.1.1 Alat	13
3.1.2 Bahan	13
3.2 Prosedur Pembuatan	13
3.2.1 Sintesis KNN.....	13
3.2.2 Sintesis BCZT	14
3.2.3 Pencampuran xKNN-(1-x)BCZT	14
3.3 Metode Karakterisasi.....	14
3.3.1 TGA-DTA	14
3.3.2 XRD.....	15
3.3.3 Dilatometri	15
3.4 Diagram Alir	16
BAB IV ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN.....	17
4.1 Proses Sintesis KNN dengan Metode Reaksi Padat	17
4.2 Proses Sintesis KNN dengan Metode Reaksi Padat	20
4.3 Proses Pencampuran KNN-BCZT.....	24
BAB V KESIMPULAN	29
DAFTAR PUSTAKA	31
LAMPIRAN.....	33
BIODATA PENULIS.....	35

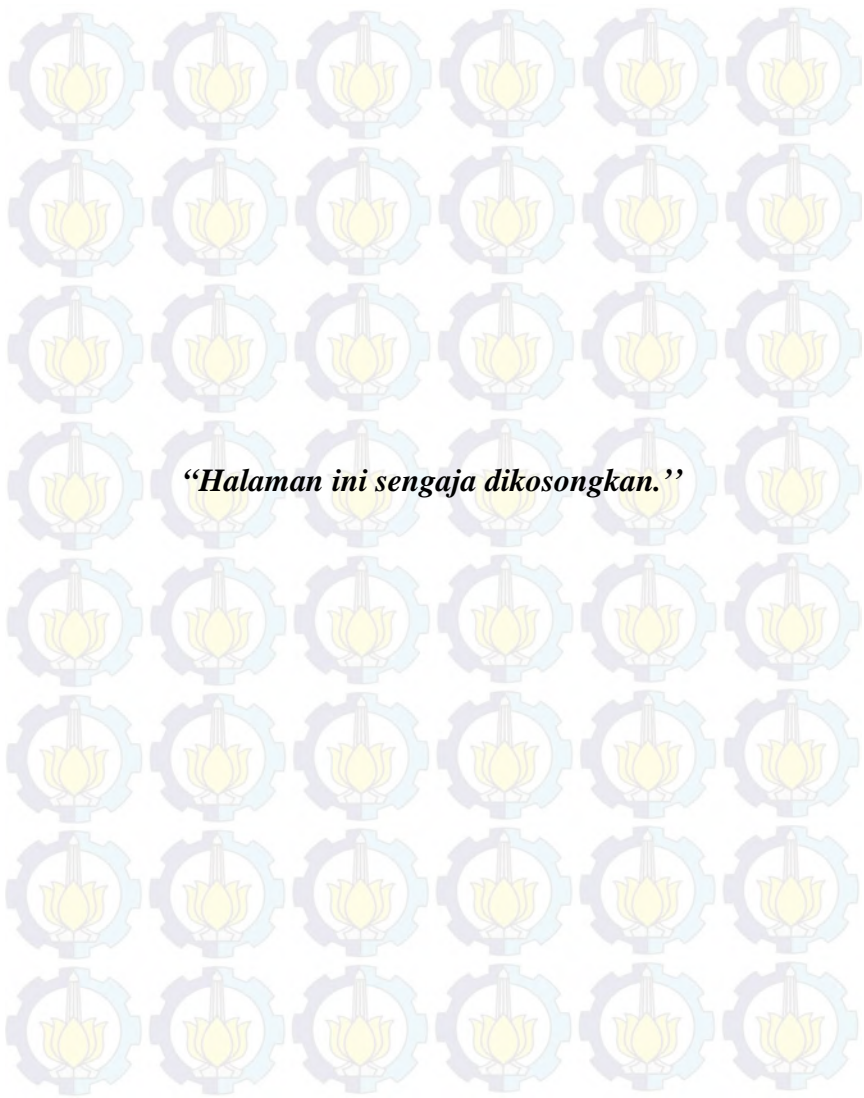
DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Struktur Kristal Perovskite.....	4
Gambar 2.2 Skema Dilatometer Secara Umum.....	9
Gambar 4.1 HasilPengujian TGA-DSC 50 Mg KNN.....	17
Gambar 4.2 Perbandingan Pola Difraksi Bubuk KNN pada Temperatur 600, 700 dan 750°C.....	19
Gambar 4.3 Grafik TGA-DTA Bubuk BCZT.....	21
Gambar 4.4 Perbandingan Pola Difraksi Bubuk BCZT pada Temperatur 850°C, 900°C, 950°C, 980° C, 1100°C dan 1200°C.....	22
Gambar 4.5 Hasil Dilatometri Campuran xKNN-(1-x)BCZT dengan x=20, 50 dan 80.....	25
Gambar 4.6 Hasil Analisis Termal TGA-DTA pada Bubuk campuran xKNN-(1-x)BCZT.....	26
Gambar 4.7 Perbandingan Hasil Pola difraksi xKNN- (1-x) BCZT Setelah rekalsinasi 1250°C selama 1 Jam.....	27



DAFTAR TABEL

Tabel 4.1 Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X KNN dengan Metode Rietveld.....	20
Tabel 4.2 Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X BCZT dengan Metode Rietveld.....	23
Tabel 4.3 Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X xKNN- (1-x) BCZT dengan Metode Rietveld.....	28



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran A: Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X KNN dengan Metode Rietveld.....	33
Lampiran B: Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X dengan Metode Rietveld BCZT.....	33
Lampiran C: Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X xKNN- (1-x) BCZT dengan Metode Rietveld.....	34



“Halaman ini sengaja dikosongkan.”

BAB I PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Dewasa ini kemajuan teknologi semakin berkembang pesat. Didukung pula dengan berbagai penemuan baru yang telah dilakukan oleh para ahli. Salah satunya adalah material dielektrik keramik yang mempunyai sifat piezoelektrik. Dimana material tersebut merupakan material yang sering digunakan dalam aplikasi elektronik seperti *tanducer*, sensor dan aktuator.

Material yang telah dikenal baik mempunyai sifat-sifat tersebut adalah PbZrTiO_3 (PZT). Dari tulisan-tulisan hasil penelitian yang sudah dilakukan, hampir semuanya mengemukakan bahaya atau kerugian dari bahan ini. Pada proses sintesa dan bahan teraplikasinya sangat perlu diwaspadai sekali karena sifat beracun pada timbal oksida. Begitu juga selama proses penguapan sintesa telah menyebabkan masalah yang cukup serius secara jangka panjang. Oleh karena itu dilakukan berbagai penelitian untuk menggantikan bahan timbal tersebut dengan material yang lebih ramah lingkungan, namun tetap mempunyai performa yang baik seperti pada PZT.

Pada dasarnya material tersebut adalah material dengan struktur perovskite dengan rumus utamanya ABO_3 . A^{2+} dan B^{4+} dapat disubstitusi dengan kation-kation yang tetap dapat mempertahankan struktur ABO_3 . Untuk itu dilakukan pembuatan bahan berbasis $(\text{K},\text{Na})\text{NbO}_3$ (KNN) dan $(\text{Ba},\text{Ca})(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ (BCZT) dengan menggunakan metode reaksi padat.

1.2 Rumusan Permasalahan

Permasalahan yang ada pada penelitian ini adalah bagaimana membuat material perovskite KNN-BCZT berfasa tunggal dengan menggunakan metode reaksi padat.

1.3 Batasan Masalah

Pada penelitian ini permasalahan dibatasi pada pembentukan material KNN-BCZT dengan menggunakan metode reaksi padat.

1.4 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk membuat material piezoelektrik bebas timbal yang berbasis KNN-BCZT dengan menggunakan metode reaksi padat.

1.5 Manfaat Penelitian

Hasil dari penelitian tentang sintesis material KNN-BCZT dengan metode reaksi padat ini diharapkan dapat memberikan sumbangsih bagi dunia industri elektronik sehingga dapat dimanfaatkan secara nyata pada masyarakat.

1.6 Sistematika Penulisan

Sistematika penulisan tugas akhir ini, tersusun dalam lima bab yaitu ;

Bab 1 : Pendahuluan

Berisi latar belakang masalah, maksud dan tujuan, perumusan masalah dan manfaat tesis.

Bab 2 : Tinjauan Pustaka

Berisi mengenai kajian pustaka yang digunakan pada tugas akhir

Bab 3: Metodologi penelitian

Berisi peralatan, bahan-bahan yang digunakan, prosedur pembuatan serta diagram alir penelitian

Bab 4 : Analisa data dan pembahasan

Berisi hasil penelitian serta pembahasan hasil.

Bab 5 : Kesimpulan

Berisi kesimpulan dari penelitian yang telah dilakukan.

BAB II

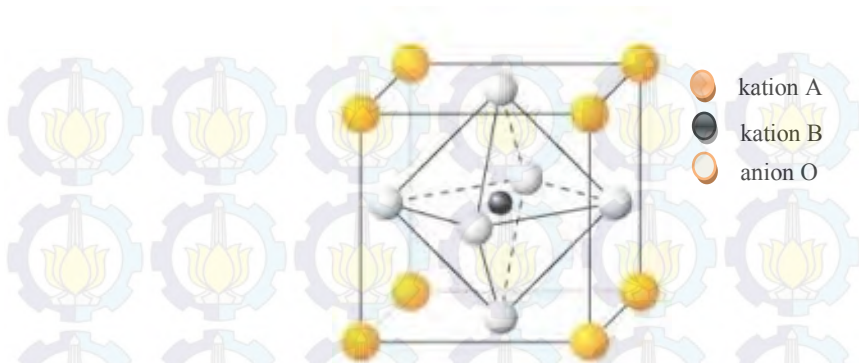
TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Bahan Piezoelektrik

Bahan dielektrik merupakan salah satu komponen penting dalam kajian elektronika. Bahan dielektrik sangat penting dalam kelistrikan karena sifat bahan dielektrik yang dapat menyimpan muatan listrik, melewatkan arus bolak-balik dan menahan arus searah. Bahan keramik dikenal sebagai bahan dielektrik yang baik. Salah satu bahan keramik maju adalah bahan piezoelektrik, yakni bahan dielektrik yang mempunyai sifat khusus.

Kristal piezoelektrik adalah bahan yang dapat terpolarisasi elektrik atau polarisasinya dapat berubah ketika diberikan stress (Barsoum, 2003). Bentuk Piezoelektrik memberikan kenyataan bahwa bilamana kristal diberikan regangan maka akan menghasilkan medan listrik di dalam zat. Pengaruh baliknya adalah pemakaian medan mengakibatkan adanya regangan.

Bahan piezoelektrik adalah bahan dengan struktur perovskite. Rumus utamanya adalah ABO_3 . Kisi satuannya adalah kubik: kation A terdapat pada pojok kubus (disebut “*B-site*”), kation B terdapat pada pusat kubus (disebut “*A-site*”), dan anion O berada pada muka kubus (Pirette, 1972). Bahan piezoelektrik dengan struktur perovskite ini menunjukkan sifat piezoelektrik yang baik dibandingkan dengan bahan piezoelektrik lain (*tungsten bronze* dan *bismuth layer*) dikarenakan dapat terpolarisasi secara spontan untuk berputar ke tiga arah (Hongliang Du, 2007).



Gambar 2. 1. Struktur Kristal Perovskite (Sumber: <http://www.google.co.id>)

Bahan yang sudah dikenal baik memiliki sifat piezoelektrik adalah PbZrTiO_3 atau sering disebut dengan PZT. Sehingga bahan ini banyak dikembangkan dan diaplikasikan. Kandungan oksida timbal merupakan bahan yang sangat beracun dan sifat beracunnya semakin meningkat dikarenakan penguapan ke lingkungan (pencemaran) pada suhu tinggi, terutama pada proses kalsinasi dan sintering (Mardiyanto, 2010).

2.2 KNaNbO_3 (KNN)

Dikarenakan kelemahan yang dimiliki oleh bahan PZT tersebut, maka dilakukanlah penelitian-penelitian oleh para ahli untuk menggantikannya. Hingga akhirnya sampai kepada bahan yang disebut KNaNbO_3 (KNN), seperti yang dilaporkan oleh Saito, dkk. (Ke Wang, dkk. 2012).

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan oleh Saito dkk, komposisi yang mempunyai nilai d_{31} (besarnya muatan induksi dari gaya yang diberikan dalam arah yang tegak lurus) yang tinggi didapatkan pada fase antara ortorombik dan tetragonal, yaitu pada alkali-niobat dengan sistem perovskite. Bahan

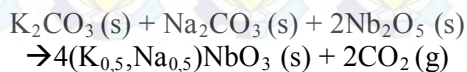
piezoelektrik dengan struktur perovskite berbasis alkali-niobat ini memiliki tetapan piezoelektrik d_{33} (besarnya muatan induksi dari gaya yang diberikan dalam arah yang sama) di atas 300 pC/N, dan bahan dengan timbal memiliki tetapan piezoelektrik (d_{33}) mencapai 416 pC/N (Saito, dkk., 2004).

Berdasarkan hal ini, banyak para peneliti lain yang berusaha mengembangkan dengan melakukan beberapa inovasi. Namun diketahui bahwa sintering KNN sulit dilakukan karena K dan Na bersifat volatil pada temperatur tinggi sehingga dapat menyimpang dari stoikiometrinya (J. Qiu, dkk. 2007).

Oleh karena itu dilakukan alternatif penelitian untuk *doping* KNN demi mendapatkan hasil yang optimal. Seperti penelitian yang dilakukan oleh Hongliang Du, dkk. yang menggabungkan KNN dengan LiNbO_3 . Dengan rumus kimia $(1-x)(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3-x\text{LiNbO}_3$, menggunakan LiNbO_3 sebesar 4-7 %mol menghasilkan struktur perovskite murni (LiNbO_3 terdifusi sempurna ke dalam KNN) dan fasa ortorombik dan tetragonal terdapat pada saat $x=0,06$ mol dan tetapan piezoelektrik d_{33} sebesar 215 pC/N.

Disebutkan pula pada penelitian yang dilakukan oleh Supattra Wongsanmai, dkk. yang membuat $((\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})(1-x)\text{Li})\text{NbO}_3$, bahwa penambahan Li memberikan perubahan fasa dari ortorombik menuju tetragonal dengan kisaran nilai x sebesar 0,06-0,065 dan temperatur curie-nya bergeser menjadi lebih tinggi dengan bertambahnya Li. Penelitian yang dilakukan oleh J. Teller dkk. dengan rumus kimia $\text{K}_x\text{Na}_{1-x}\text{NbO}_3$ ($0,4 \leq x \leq 0,6$) melaporkan bahwa saat $x=0,5$ parameter kisi yang terbentuk adalah $a=4,0046 \text{ \AA}$; $b=3,94464 \text{ \AA}$ dan $c=4,0020 \text{ \AA}$ dengan $\beta=90,3327^\circ$ pada suhu ruang.

KNaNbO_3 yang banyak diteliti adalah senyawa yang dibuat dari karbonatnya, yaitu K_2CO_3 , Na_2CO_3 dan Nb_2O_5 . Reaksinya adalah sebagai berikut:

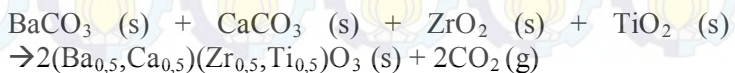


2.4 BaCaTiZrO₃ (BCZT)

Terdapat tiga cara untuk meningkatkan kepadatan dan sifat piezoelektrik bahan KNN tersebut. Pertama adalah menambahkan BaTiO₃, SrTiO₃, LiNbO₃, LiTaO₃ untuk membentuk *solid-solution* yang baru sehingga mengubah diagram fasa KNaO₃-NbO₃ dan mempertinggi kestabilan fasa KNN. Ke dua adalah dengan membuat penambahan seperti K₄CuNb₈O₂₃, K_{5,4}CuTa₁₀O₂₉, CuO dan ZnO untuk menurunkan temperatur siteringnya. Ke tiga adalah dengan menggunakan metode lain seperti hot pressing dan spark plasma sintering. Namun kedua metode ini dirasa kurang cocok untuk dunia industri karena membutuhkan biaya yang sangat mahal (Du, dkk 2007).

(Ba_{0,5},Ca_{0,5})(Zr_{0,5},Ti_{0,5})O₃ atau bahan yang kerap disebut sebagai BCZT juga telah diteliti sebagai bahan *dopant* untuk KNN. Penambahan Ca pada Ba dalam BZT (BaZrTiO₃) menjadi BCZT (BaCaZrTiO₃) dimaksudkan untuk membentuk struktur yang lebih baik dan sifat listrik yang lebih cocok untuk aplikasi khusus. Substitusi ion Ba dan Ca tidak terlalu mempengaruhi temperatur curie, tetapi dapat menurunkan temperatur transisi dari tetragonal menjadi ortorombik. Seperti penelitian W. Li dkk. yang menggunakan temperatur sintering 1450°C, menghasilkan d_{33} sebesar 387 pC/N. Penelitian yang dilakukan oleh Y. Zeng dkk. dengan rumus kimia Ba(1-x)Ca_xTi(1-y)Zr_yO₃ (x=0,08 ; y=0,26) melaporkan bahwa telah terbentuk kristal dengan parameter kisi a=b=c= 4,047 Å pada temperatur 25°C.

Pembuatan BCZT yang kerap dilakukan adalah dengan menggunakan karbonat dari barium dan kalsium serta oksida dari zirkonia dan titanium sebagai *raw materials*. Yakni BaCO₃, CaCO₃, ZrO₂ dan TiO₂. Sehingga reaksinya adalah sebagai berikut:



KNN-BCZT apabila dicampurkan, maka akan menempati posisi-posisi sebagaimana rumus umum pada struktur perovskite dengan kation A ditempati oleh kalium, natrium, barium dan kalsium, dan kation B ditempati oleh niobum, zirkonium dan titanium.

Penelitian yang menyerupai penggabungan KNN-BCZT adalah penambahan Ba dan Ca pada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$, seperti yang dilakukan oleh J. Taub et al. Ion Ba^{2+} dan Ca^{2+} menempati posisi A pada struktur perovskite ABO_3 menghasilkan vakansi kation sehingga muatannya seimbang dan dapat mengurangi stress lokal dan menghasilkan sifat yang lebih halus.

2.5 Metode Reaksi Padat

Terdapat beberapa metode yang digunakan untuk sintesis serbuk keramik. Secara umum dibagi dalam dua kategori besar, yaitu metode mekanis dan metode kimia. Metode mekanis umumnya digunakan untuk menyiapkan bubuk ke ramik tradisional dari bahan baku alami. Sedangkan metode kimia biasanya digunakan untuk menyiapkan bubuk keramik maju dari bahan sintetis atau dari bahan baku alami yang telah mengalami tingkat perbaikan kimia yang cukup.

Beberapa metode kimia dalam sintesis bubuk keramik diantaranya adalah: metode reaksi padat (*solid state reaction*), sintesis dari larutan cair (*liquid solution*) dan reaksi fase uap (*vapor-phase reaction*).

Solid-state reaction adalah reaksi dekomposisi kimia, dimana reaktan padat dipanaskan untuk menghasilkan padatan baru ditambah gas, biasanya digunakan untuk produksi serbuk oksida sederhana dari karbonat, hidroksida, nitrat, sulfat, asetat, oksalat, alkoksida, dan garam logam lainnya. Contohnya adalah penguraian kalsium karbonat (kalsit) untuk menghasilkan kalsium oksida dan gas karbon dioksida.

Reaksi kimia yang diawali dari material padatan biasanya dalam bentuk bubuk campuran, biasa digunakan untuk produksi serbuk oksida kompleks seperti titanat, ferit, dan

silikat. Reaktannya biasanya terdiri dari oksida sederhana, karbonat, nitrat, sulfat, oksalat, atau asetat.

Menurut Budiman, 2012, metode reaksi padat adalah metode pembuatan keramik yang dilakukan pada keadaan padat yang terjadi pada suhu di atas 1000°C. Metode sintesis dengan *solid-state* digunakan untuk membuat komposisi yang unik dan morfologi yang diperlukan untuk menghasilkan sifat yang diinginkan dalam kristal, piezoelektrik dan bahan-bahan maju lainnya. Pada umumnya, *solid-state reaction* adalah reaksi stoikiometri serbuk pada temperatur tinggi. Keuntungan dari metode ini adalah sederhana, dalam arti semua orang dapat melakukannya namun dapat menjadi rumit misalkan pada temperatur dan atmosfer yang digunakan.

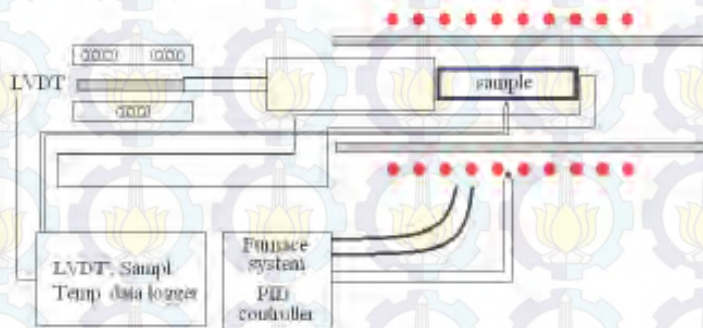
Pada metode sintesis dengan *solid state*, reaksi yang terjadi adalah reaksi difusi terbatas, yaitu temperatur sintering yang digunakan biasanya adalah temperatur tinggi agar terjadi difusi (biasanya sekitar 2/3 dari *melting point*-nya) dan memberikan hasil termodinamika yang stabil (Wilkinson, 2001).

2.7 Analisa Termal

Analisa termal dapat didefinisikan sebagai pengukuran sifat-sifat fisik dan kimia sebagai fungsi dari suhu. Dua jenis teknik analisa termal yang utama adalah analisa termogravimetrik (TGA) yang dapat mengukur perubahan berat sampel sebagai fungsi dari suhu, dan analisa diferensial termal (DTA) yang dapat mengukur perbedaan suhu antara sampel dengan material referensi yang inert sebagai fungsi dari suhu. Ketika struktur kristal atau ikatan kimia dari suatu material berubah, perubahan tersebut akan berakibat pada perubahan penyerapan atau pelepasan panas yang mengakibatkan perubahan suhu material yang terjadi tidak linier/tidak sebanding dengan material inert. DTA dapat digunakan untuk analisa struktur gelas, transisi fasa polimorfik, penentuan diagram fasa, jalur dekomposisi, kinetika energi, perhitungan entalpi dan kapasitas panas (Agus Sukarto, 2012).

2.8 Dilatometri

Analisa termal lainnya adalah dilatometri. *Dilatometer* atau DIL merupakan alat analisa *thermal* yang digunakan untuk mempelajari perubahan ukuran material terhadap proses fisika maupun kimia yang diberikan. Ketika material mengalami proses fisika, seperti pemanasan dan pendinginan, atau proses kimia, seperti reaksi kimia, maka material dapat mengalami perubahan ukurannya. Identifikasi perubahan ukuran material memberikan informasi mengenai karakteristik material seperti *Coefficient of Elongation* (CoE), *shrinkage*, transformasi fasa, sintering dll, yang kemudian dapat diaplikasikan sesuai dengan tujuannya. Berbagai jenis dilatometer telah dikembangkan dan dikomersialisasikan untuk berbagai keperluan, seperti optical dilatometer, capacity dilatometer, quenching dilatometer dan thermomechanical analyzer. (Agus Sukarto, 2013). Secara umum, alat dilatometer memiliki skema seperti pada Gambar 2.1.



Gambar 2.2 Skema Dilatometer secara Umum

2.6 Difraksi sinar-X

XRD merupakan salah satu alat uji yang digunakan untuk mengetahui fasa yang terbentuk dalam suatu material padat. Selain

itu biasanya digunakan untuk mendapatkan informasi mengenai struktur, komposisi dan keadaan kristal material. Sampel yang disiapkan berbentuk serbuk, padat atau film (Sibilia, 1996). Alat ini bekerja menggunakan prinsip difraksi yang memiliki panjang gelombang lebih besar atau sama dengan ukuran kisi atau celah. Hasil difraksi tersebut akan menghasilkan pola tertentu sesuai dengan hukum yang dikeluarkan oleh Lawrence dan Henry Bragg pada tahun 1915.

Tabung sinar-X menghasilkan radiasi sinar-X dengan berbagai panjang gelombang mulai panjang gelombang rendah disebut sinar-X kontinyu hingga panjang gelombang dengan intensitas maximum atau disebut sinar-X karakteristik. Metode difraksi sinar-X umumnya membutuhkan sumber dengan panjang gelombang tunggal (monokromatik) radiasi sinar-X. Radiasi monokromatik ini datang dari sinar-X karakteristik yang dihasilkan dengan menyaring radiasi lain dari spektrum (Leng, 2008). Pola difraksi tersebut jika dihubungkan dengan detektor yang memiliki amplifier maka akan menghasilkan kurva hubungan antara intensitas dengan sudut 2θ . Kurva tersebut akan menghasilkan puncak jika material yang terkena sinar-X memiliki keteraturan sangat tinggi (kristal). Setiap material itu unik maka akan diperoleh pola difraksi yang berbeda antara material yang satu dengan material yang lainnya.

Berdasarkan proses di atas, jika berkas dari sinar-X monokromatik diarahkan langsung pada kristal suatu material, maka dapat diamati terjadinya refleksi atau difraksi dari sinar X pada berbagai sudut sesuai berkas utama. Hubungan antara panjang gelombang berkas sinar X, λ , dengan sudut difraksi, 2θ , dan jarak antar atom dari kisi kristal, menurut Bragg dapat dinyatakan:

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad \dots\dots\dots(2.1)$$

Dimana n merupakan orde difraksi. Dari persamaan ini kita dapat menghitung jarak interplanar dari kristal material yang akan dipelajari (Sibilia, 1996). Dengan mempelajari jarak dari bidang kristalografi dengan metode difraksi ini, maka dapat ditentukan

struktur kristal dari material. Sebagai contoh kristal kubik dengan parameter kisi (a) mengikuti persamaan berikut.

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \dots\dots\dots (2.2)$$

Indeks miller (hkl) menunjukkan rangkaian bidang paralel dalam kristal dengan jarak d_{hkl} (Leng, 2008).

Adapun faktor yang mempengaruhi intensitas dinyatakan dalam perhitungan berikut.

$$I_{hkl} = K \times p_{hkl} \times L_{\theta} \times P_{\theta} \times A_{\theta} \times T_{hkl} \times E_{hkl} \times |F_{hkl}|^2$$

Dimana:

- K adalah faktor skala yang bersifat konstan.
- P_{hkl} adalah faktor multiplisitas, yaitu adanya jumlah refleksi simetris setara.
- L_{θ} adalah Lorentz multiplier, yang didefinisikan oleh geometri difraksi.
- P_{θ} adalah faktor polarisasi.
- A_{θ} adalah multiplier penyerapan.
- T_{hkl} adalah faktor orientasi.
- E_{hkl} adalah multiplier penyimpangan dari model difraksi kinematikal. Pengali ini cukup kecil sehingga hampir selalu diabaikan.
- F_{hkl} adalah faktor struktur, didefinisikan oleh rincian dari struktur kristal material seperti koordinat dan jenis atom, distribusi atom di antara kisi yang berbeda, dan gerak termal atom.

Berdasarkan persamaan 2.2 tersebut, didapat bahwa besar intensitas difraksi sinar X bergantung bidang (hkl) yang dapat dinyatakan sebagai berikut.

$$I(hkl) \propto |F(hkl)|^2$$

Dimana faktor struktur, F , bergantung pada posisi atom dalam unit sel, yang dapat dituliskan.

$$F_{hkl} = \sum_1^N f_n e^{2\pi i (hu_n + kv_n + lw_n)}$$

(Cullity, 1956)

Berdasarkan hasil pola difraksi sinar X, selanjutnya dapat dilakukan analisis untuk mengetahui fasa apa saja yang ada dalam material uji. Analisis ini dilakukan dengan membandingkan pola difraksi sampel ke database yang berisi pola acuan untuk mengidentifikasi fasa yang ada dengan menggunakan suatu *software*. Informasi yang akan diperoleh tentang sampel seperti fasa, unsur-unsur atau kepadatan (<http://www.crystalimpact.de/match/Default.htm>).

Selain itu, hasil XRD ini juga dapat dilakukan analisis pencocokan (*refinement*) Rietveld. Analisis Rietveld adalah suatu metode pencocokan antara kurva teoritis dengan kurva eksperimen sampai terdapat kesesuaian antara kedua kurva secara keseluruhan. Kurva eksperimen (observasi) adalah susunan pola-pola antara sudut difraksi (2θ) dengan intensitasnya yang didapatkan dari alat difraksi sinar-X (XRD). Kurva teoritis (kalkulasi) adalah kurva yang didapatkan dari hasil analisis Rietveld. Kesesuaian ke dua kurva diusahakan dengan metode kuadrat terkecil (*leastsquare*) yang dilakukan secara berulang-ulang (iterasi) sehingga terdapat kecocokan antara ke dua kurva yang berarti terdapat kecocokan antaradata yang diamati dengan data kalkulasi. Ada berbagai macam program computer untuk menganalisis datadifraksi tersebut, misalnya dengan *software* Rietica, Fulprof, MAUD dll. Dalam analisis Rietveld ini dilakukan panghalusan (*refinement*) parameter-parameter sebuah model yang disusun berdasarkan interpretasi struktur Kristal untuk dicocokkan dengan data terukur sehingga tercapai nilai selisih kuadrat minimal. Model dibuat dari database kristalografi yang dipilih dari data ICSD. Dengan memanfaatkan parameter keluaran *software* tersebut dapat menganalisis komposisi fasa serta perhitungan fraksi berat absolut (Christianto, 2013).

BAB III METODOLOGI

3.1 Alat Dan Bahan

3.1.1 Alat

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini diantaranya adalah:

1. *Laboratory planetary milling* “Pulverisette 5” (Fritsch GmbH)
2. *Evaporator rotatif* “VV Micro” (Heidolph)
3. Furnace “Thermolyne” F 1500 (Barnstead)
4. Spatula dan timbangan digital.

Sedangkan untuk karakterisasi digunakan:

1. *Thermal Gravimetry Analysis* (TGA/DSC),
2. *X-Ray Diffractometer* (XRD)
3. *Dilatometry*.

3.1.2 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1. serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Nb_2O_5 , $BaCO_3$, $CaCO_3$, ZrO_2 , TiO_2 (*merck*)
2. alkohol 99,9%.

3.2 Prosedur Pembuatan

Metode yang digunakan dalam penelitian ini adalah metode reaksi padat atau *solid state reaction*.

3.2.1 Sintesis KNN

KNN atau $(K,Na)NbO_3$ dibuat dengan:

1. Menimbang bubuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 dan Nb_2O_5
2. Semua bubuk dicampur dengan alkohol (99%) dalam *planetary milling* yang dilengkapi dengan *zirconia balls* selama 1 jam dengan kecepatan putaran 150 rpm.

3. Bubuk campuran dikeringkan menggunakan evaporator
4. Dilakukan analisis termal (TGA-DSC)
5. Dikalsinasi pada temperatur 650, 700 dan 750°C selama 1 jam.

3.2.2 Sintesis BCZT

BCZT atau BaCaZrTiO_3 dibuat dengan:

1. Menimbang serbuk BaCO_3 , CaCO_3 , ZrO_2 dan TiO_2 sesuai stoikiometri
2. Semua bubuk dicampur dengan alkohol 99% dalam *planetary milling* selama 1 jam dengan kecepatan 150 *rpm* menggunakan *zirconia balls*.
3. Dilakukan analisis termal
4. Dikalsinasi pada temperatur 850, 900, 950, 1100 dan 1200°C selama 1 jam.

3.2.3 Pencampuran (x)KNN-(1-x)BCZT

Setelah didapatkan serbuk KNN dan BCZT, kedua bubuk ini dicampur dengan alkohol 99% dalam *planetary milling* menggunakan *zirconia balls* selama 2 jam dengan kecepatan putaran 150 *rpm*, dengan variasi nilai x adalah 0,8; 0,5 dan 0,2.

Untuk mendapatkan serbuk KNN-BCZT, bahan campuran ini lalu dikeringkan. Kemudian dilakukan uji dilatomerti dan XRD. Setelah itu direkalsinasi pada temperatur 1250°C selama 1 jam.

3.3 Metode Karakterisasi

3.3.1 TGA-DTA

Uji TGA-DTA dilakukan untuk mengetahui suhu kalsinasi dari bahan-bahan yang telah dicampur. Dari pengujian ini didapatkan grafik berupa perubahan massa terhadap suhu sehingga dapat diketahui pada suhu berapa bahan tersebut memiliki massa yang konstan.

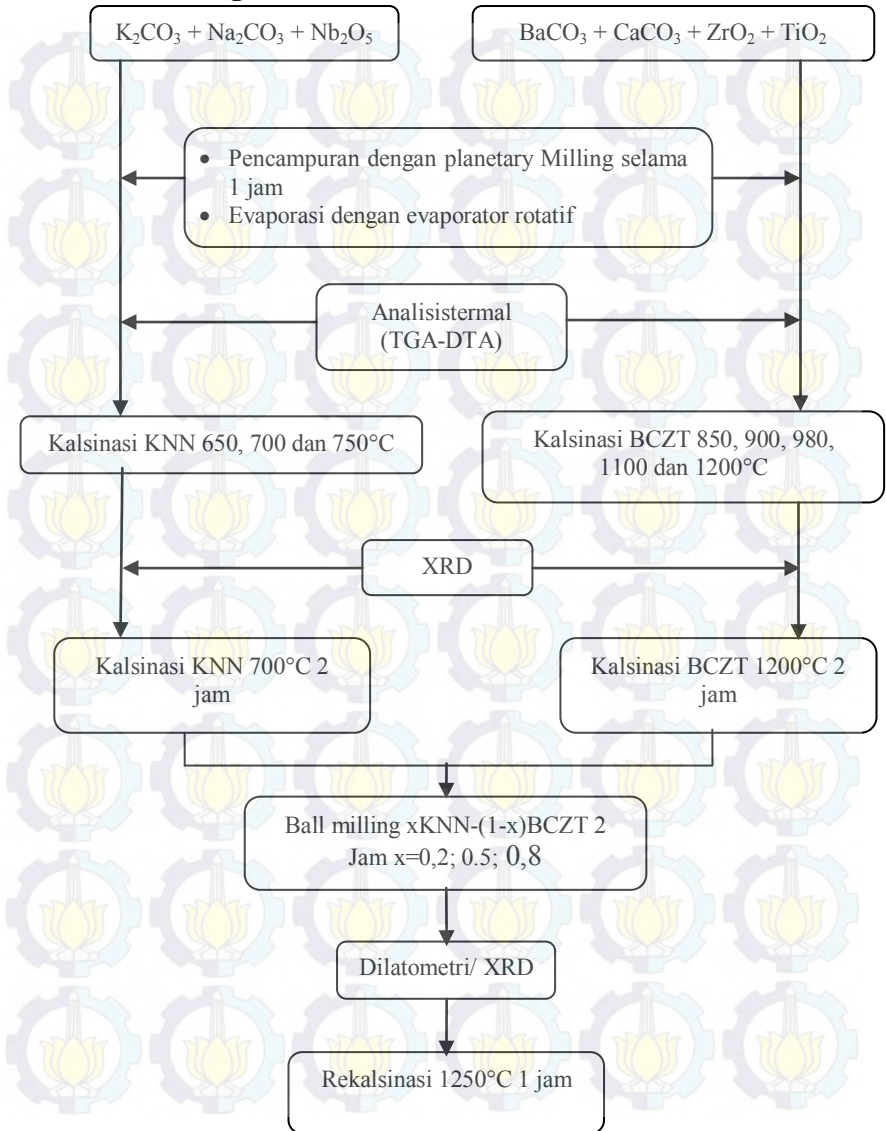
3.3.2 XRD

Karakterisasi dengan XRD dilakukan setelah bahan dicampur dan dipanaskan dalam *furnace*. Uji XRD ini dilakukan untuk mengetahui fasa apa saja yang terdapat pada bahan yang telah dibuat. Data yang didapatkan berupa pola difraksi ketika bahan ditembak dengan sinar-X. Pola yang dihasilkan berupa perbandingan antara intensitas dan sudut difraksi. Dari hasil karakterisasi ini, data yang telah didapatkan kemudian dianalisa dengan menggunakan software untuk dicocokkan dengan *database* yang telah ada (*match*).

3.3.3 Dilatometri

Untuk melakukan analisis termal dilatometri ini, bahan yang berupa bubuk dibuat pellet berbentuk balok terlebih dahulu. Sehingga nantinya dapat diketahui perubahan dimensi pada bahan terhadap suhu yang diberikan.

3.3 Diagram Alir

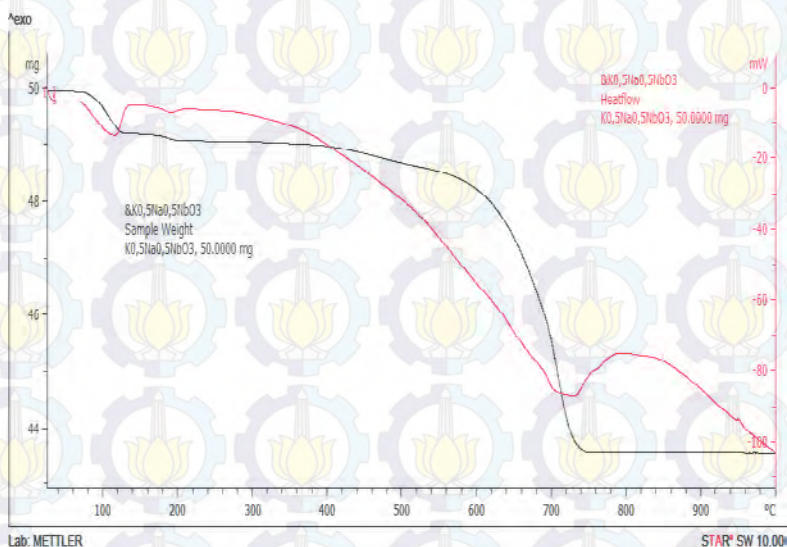


BAB IV

ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN

4.1 Proses sintesis KNN dengan metode reaksi padat

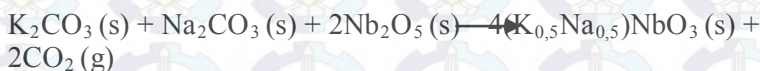
Sintesis KNN ($K_{0,5}Na_{0,5}Nb_2O_3$) dilakukan dengan menggunakan metode reaksi padat (pencampuran biasa). Pencampuran dilakukan menggunakan *Planetary Milling* yang dilengkapi dengan *zirconiaballs* dalam alkohol 99% selama 1 jam. Kemudian dikeringkan dengan menggunakan *evaporator rotatif* untuk mendapatkan serbuk KNN dengan tetap menjaga kehomogenan campuran. Setelah itu dilakukan analisis termal (TGA-DTA) untuk mengetahui temperatur kalsinasinya. Dari hasil analisis termal tersebut didapatkan grafik seperti pada gambar 4.1.



Gambar 4.1 Grafik TGA-DSC Bubuk BCZT

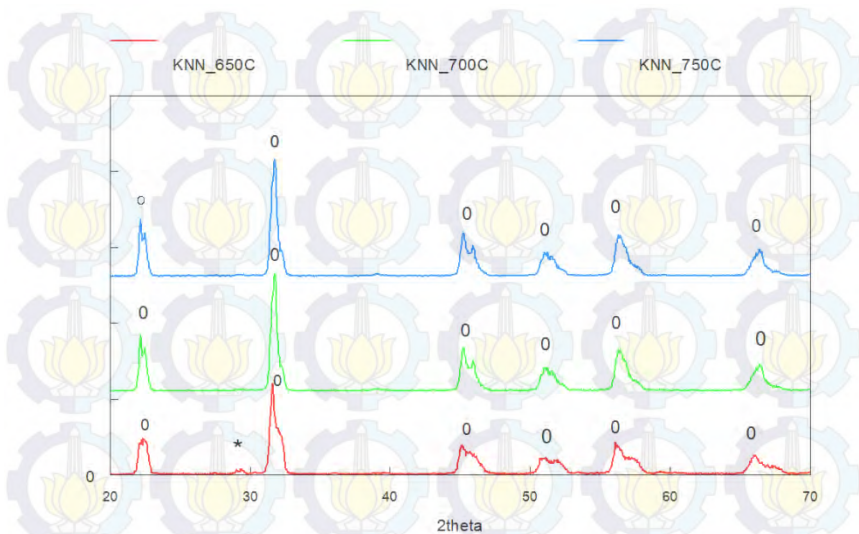
Dari gambar 4.1 tersebut nampak bahwa penurunan massa terjadi pada temperatur sekitar 100°C dan 650-750°C, juga

terlihat pula adanya reaksi endotermik. Pengurangan massa yang terjadi pada temperatur sekitar 100°C adalah peristiwa penguapan air yang masih terkandung dalam bubuk campuran karena proses pengeringan yang belum sempurna. Sedangkan saat temperatur 650°C hingga 750°C dimungkinkan karena adanya CO₂ yang terlepas dari karbonatnya kurang lebih sebesar 11,47%, yaitu sebanyak 5,735 mg dari 50 mg sampel yang diuji. Hal ini sesuai dengan persamaan reaksinya yaitu:



Dimana CO₂ yang terlepas adalah sebesar 11,33% (berdasarkan persamaan reaksi). Peristiwa endotermik yang teramati adalah lepasnya CO₂ dari karbonatnya kemudian menguap ke udara sehingga menyebabkan pengurangan massa. Setelah melewati temperatur 750°C, tidak terjadi lagi adanya penurunan massa.

Berdasarkan hasil tersebut, diambil titik-titik temperatur untuk dilakukan kalsinasi bubuk K NN. Titik-titik temperatur tersebut adalah 650°C, 700°C dan 750°C. Setelah itu dilakukan karakterisasi sinar-X untuk mengetahui derajat kekristalan bubuk KNN. Analisa kualitatif karakterisasi ini dilakukan dengan menggunakan *software Match!*. Hasilnya menunjukkan bahwa bubuk campuran dengan kalsinasi 700°C selama 1 jam memiliki pola difraksi yang *single phase*.



Gambar 4.2. Perbandingan pola difraksi bubuk KNN pada temperatur kalsinasi 600, 700 dan 750°C

Bubuk campuran yang dikalsinasi pada temperatur 650°C menunjukkan sudah mulai terbentuk perovskite, namun masih terdapat fasa lain berupa NaNb_3O_8 pada $2\theta = 29,57^\circ$. Bubuk campuran yang dikalsinasi pada temperatur 700°C dan 750°C menunjukkan pola difraksi yang sudah *single phase* dan tidak disertai adanya fasa lain selain KNN.

Simbol 0 adalah fasa yang diidentifikasi sebagai KNaNbO_3 , sedangkan tanda * yang terdapat pada pola difraksi sampel dengan temperatur kalsinasi 650°C adalah NaNb_3O_8 . Dengan demikian dapat dikatakan bahwa KNN dengan struktur perovskite terbentuk pada temperatur 700°C. Atom K dan Na menempati posisi A dan Nb menempati posisi B pada ABO_3 .

Analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X dilakukan dengan menggunakan *software* Rietica. Analisis Rietveld ini digunakan untuk mengetahui parameter kisi KNN dengan menggunakan

model berupa data COD yang diperoleh dari situs *crystallography.net*. Analisa dengan menggunakan Rietica ini menghasilkan kristal berupa perovskite tetragonal dengan parameter kisi seperti pada Tabel 4.1:

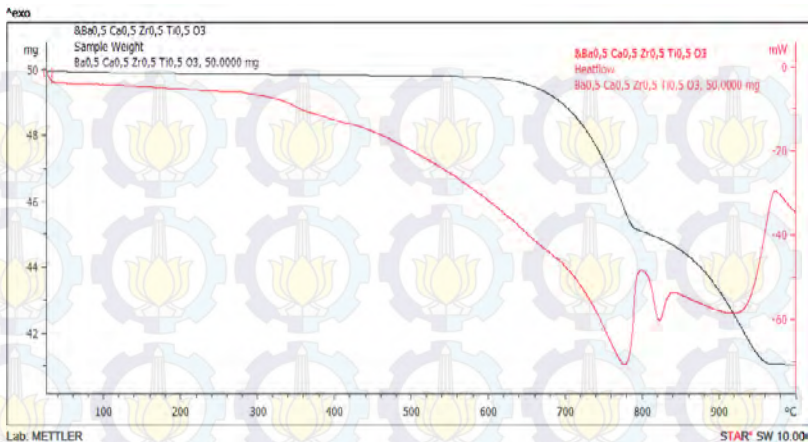
Tabel 4.1. Parameter Kisi KNN Dari Pola Difraksi Sinar-X KNN Dengan Menggunakan Metode Rietveld

Parameter	Nilai
Parameter kisi	a:3,9587 Å ± 0,0022
	c:4,0136Å ± 0,0022
Volume kisi	62,8997 Å ³ ± 0,0616
R _p	17,47 %
R _{wp}	12,84 %
GoF	0,5650 %
R _B	0,23

Nilai R_p, R_{wp} dan GoF menunjukkan hasil yang masih dapat diterima (R_p< 20; R_{wp}< 20; GoF atau χ < 4). Dengan demikian, terdapat kesesuaian antara KNN hasil sintesis dengan model acuan.

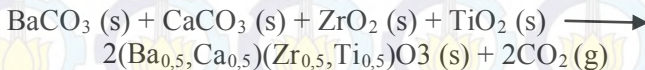
4.2 Proses sintesis BCZT dengan metode reaksi padat

Sama seperti pada KNN, bubuk campuran (Ba_{0,5}Ca_{0,5})(Zr_{0,5}Ti_{0,5})O₃ atau BCZT juga dilakukan analisis termal TGA-DTA untuk mengetahui temperatur kalsinasinya.



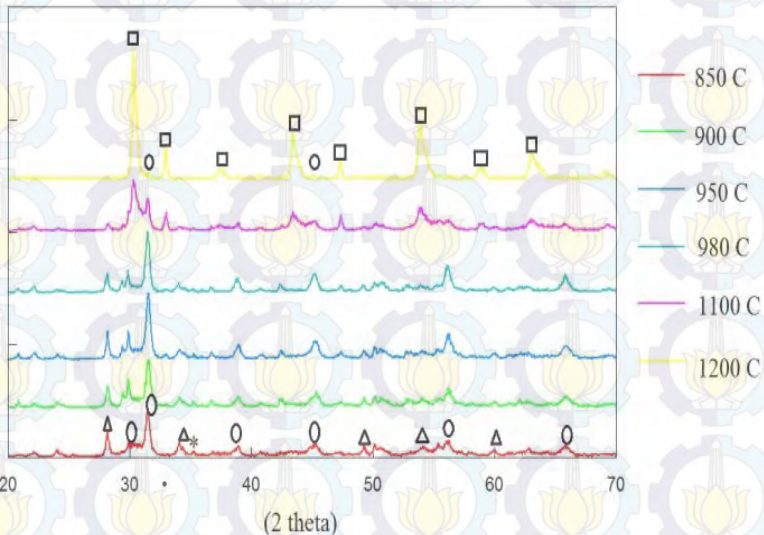
Gambar 4.3. Grafik TGA-DSC Bubuk BCZT

Dari grafik tersebut dapat dilihat bahwa terdapat penurunan massa pada temperatur sekitar 700-800°C dan 800-950°C yang disertai dengan adanya reaksi endotermik. Dapat dilihat pula terjadi reaksi eksotermik pada temperatur di atas 950°C. Dari grafik TGA, dapat dilihat bahwa pengurangan massa yang terjadi kurang lebih sebesar 16,706% sebanding dengan hilangnya CO₂ kurang lebih sebesar 17,58% pada persamaan reaksi:



Fenomena endotermik pada saat temperatur 700°C sampai 800°C dimungkinkan terjadi karena adanya penguraan CaCO₃ menjadi CaO dan CO₂, sedangkan fenomena endotermik pada temperatur 800°C hingga 950°C terjadi karena adanya pelepasan CO₂ ke udara. Reaksi eksotermik yang terjadi pada temperatur di atas 950°C tersebut dimungkinkan karena reaksi pembentukan kristal yang belum selesai. Sehingga terjadi pengurangan massa pada temperatur-temperatur tersebut. Oleh karena fenomena-fenomena yang terjadi tersebut, maka dilakukan kalsinasi pada temperatur 850°C, 900°C, 950°C, 980°C, 1100°C dan 1200°C

sebagai titik-titik temperatur kemungkinan terbentuknya fasa BCZT. Selanjutnya, dari bubuk-bubuk yang telah dikalsinasi tersebut dilakukan karakterisasi dengan sinar-X untuk mengetahui temperatur kalsinasi yang optimal.



Gambar 4.4. Perbandingan Pola Difraksi Bubuk BCZT pada Temperatur 850, 900, 950, 980, 1100 dan 1200°C

Dengan: \square adalah BaCaZrTiO_3
 \circ adalah BaTiO_3 atau CaTiO_3
 Δ adalah ZrO_2
 $*$ adalah CaO

Pada pola difraksi sinar-X dengan temperatur kalsinasi 1200°C terbentuk pola yang lebih baik daripada temperatur lainnya, dalam arti mempunyai fasa impuritas yang lebih sedikit daripada bubuk campuran yang dikalsinasi pada temperatur 850, 900, 950 dan 1100°C. Diketahui bahwa fasa yang terbentuk pada bubuk BCZT dengan temperatur kalsinasi 1200°C, berdasarkan

analisa kualitatif dengan menggunakan *software Match!*. Tanda □ adalah BaZrO_3 , CaZrO_3 , BaTiO_3 dan CaTiO_3 yang menempati tempat yang sama. Sehingga dikatakan bahwa fasa yang terbentuk tersebut adalah $(\text{Ba}_{0,5}\text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}\text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$, karena Ba bersubstitusi dengan Ca menempati posisi A dan Zr bersubstitusi dengan Ti menempati posisi B pada ABO_3 .

Pola difraksi bubuk BCZT yang dikalsinasi pada temperatur 850°C, 900°C, 950°C, dan 980°C menunjukkan adanya fasa impuritas berupa ZrO_2 , CaO , BaTiO_3 , CaTiO_3 , BaZrO_3 dan CaZrO_3 . Sedangkan pola difraksi bubuk BCZT yang dikalsinasi pada temperatur 1200°C menunjukkan terbentuknya fasa BaCaZrTiO_3 dengan fasa sekunder BaTiO_3 dan CaTiO_3 . Sehingga dapat disimpulkan bahwa BCZT terbentuk pada temperatur 1200°C.

Analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X dilakukan dengan menggunakan *software* Rietica. Analisis Rietveld ini digunakan untuk mengetahui parameter kisi BaCaZrTiO_3 dengan menggunakan model berupa data COD yang diperoleh dari situs *crystallography.net*. Analisa dengan menggunakan Rietica ini menghasilkan kristal perovskite ortorombik dengan parameter kisi seperti pada Tabel 4.2:

Tabel 4.2. Parameter Kisi BCZT Dari Pola Difraksi Sinar-X Dengan Menggunakan Metode Rietveld

Parameter	Nilai
Parameter kisi	a: 5,2614 Å ± 0,0088
	b: 5,8048 Å ± 0,0044
	c: 7,9454 Å ± 0,4591
Volume kisi	242,6692 Å ³ ± 0,4591
R _p	32,24 %
R _{wp}	21,20 %
GoF	0,4336 %
R _B	0,12

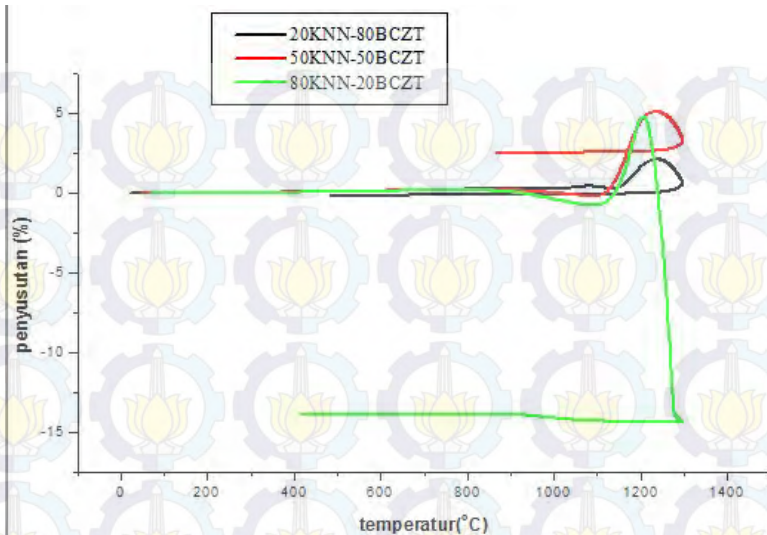
Nilai GoF atau χ^2 telah menunjukkan hasil yang baik dengan nilai ≤ 4 , namun nilai R_p dan R_{wp} masih menunjukkan nilai yang besar dengan nilai ≥ 20 . Model yang digunakan dalam refinement ini adalah CaTiO_3 ortorombik (COD_1000022). Model ini digunakan dengan pertimbangan bahwa Ba menempati tempat yang sama dengan Ca, sedangkan Zr menempati tempat yang sama dengan Ti.

4.3 Proses pencampuran KNN-BCZT

Setelah masing-masing bubuk KNN dan BCZT terbentuk, maka dilakukan pencampuran terhadap keduanya. Perbandingan mol yang digunakan dalam pencampuran ini adalah 20:80; 50:50; dan 80:20 %mol.

Proses pencampuran dilakukan seperti halnya membuat KNN maupun BCZT, yaitu dengan menggunakan *planetary milling* yang dilengkapi *zirconia balls* dalam medium alkohol 99%, kemudian dikeringkan dalam *evaporator rotatif*.

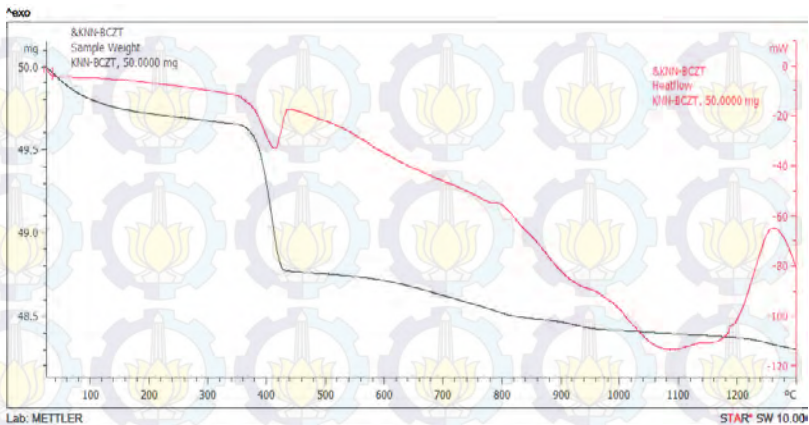
Untuk mengetahui temperatur sintering bubuk campuran xKNN-(1-x)BCZT, maka dilakukan analisis termal dilatometri. Hasilnya seperti pada gambar 4.7 berikut ini:



Gambar 4.5 Hasil Dilatometri Campuran x KNN-(1- x)BCZTDengan $x= 20, 50$ Dan 80 %mol

Pada pelet campuran x KNN-(1- x)BCZT dengan $x= 20$ dan $x= 50$ %mol menunjukkan pemuaihan yang tidak lazim pada sampel peletnya, kurang lebih mencapai 5% di atas temperatur 1100°C. Sedangkan campuran dengan $x= 80$ %mol menunjukkan pemuaihan pada temperatur di atas 1100°C dan maksimum pada temperatur 1250°C kemudian menyusut hingga $\pm 14\%$.

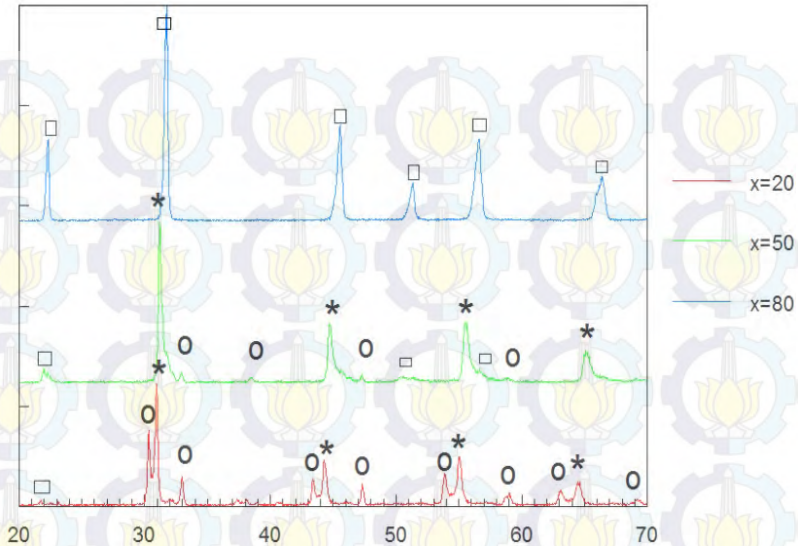
Untuk mengetahui reaksi yang terjadi, maka dilakukan analisa termal TGA-DTA yang menunjukkan hasil seperti pada gambar 4.8:



Gambar 4.6 .Hasil Analisis Termal (TGA-DTA) pada Bubuk Campuran KNN-BCZT

Dari hasil analisis termal TGA-DTA tersebut nampak bahwa masih terdapat pengurangan massa sebesar 1,78%, yaitu sebanyak 0,89 mg dari 50 mg sampel yang diuji pada temperatur 401,97°C yang juga disertai adanya peristiwa endotermik. Nampak pula peristiwa eksotermik pada temperatur 1250°C. Pencampuran KNN dan BCZT yang dilakukan dalam medium alkohol (CH_3COOH) dapat membentuk hidrat. Pengurangan massa yang terjadi pada temperatur 401,97°C tersebut diduga adalah pelepasan dari hidrat tersebut yang berikatan dengan KNN atau BCZT.

Berdasarkan kedua hasil di atas, maka dilakukan rekalsinasi pada bubuk campuran $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$ dengan temperatur 1250°C selama 1 jam. Kemudian dilakukan XRD.



Gambar 4.7 Perbandingan Hasil Pola Difraksi $X_{\text{KNN}}-(1-X)\text{BCZT}$ Setelah Rekalsinasi 1250°C Selama 1 Jam

Keterangan:

○ adalah fasa BCZT

* adalah fasa intermediet ($\text{BaNb}_{3,47}\text{Ti}_{0,53}\text{O}_6$ dan BaNbO_3)

□ adalah fasa KNN

Hasil pola difraksi tersebut menunjukkan bahwa pada bubuk campuran dengan $x=20$ %mol terdapat puncak-puncak fasa yang diidentifikasi sebagai BCZT dan fasa intermediet berupa $\text{BaNb}_{3,47}\text{Ti}_{0,53}\text{O}_6$ dan BaNbO_3 , sedangkan bubuk campuran dengan $x=50$ %mol nampak puncak-puncak fasa yang diidentifikasi sebagai BCZT, fasa intermediet dan fasa KNN. Bubuk campuran dengan $x=80$ %mol memiliki pola difraksi yang diidentifikasi sebagai KNN. Fasa tunggal yang terbentuk ini adalah fasa saat komposisi KNN dominan terhadap BCZT, sehingga dikatakan bubuk campuran dengan $x=80$ %mol ini memiliki struktur *perovskite* (ABO_3) menghasilkan vakansi

kation dengan A ditempati oleh K, Na, Ba dan Ca; B ditempati oleh Nb, Zr dan Ti. Dikatakan telah terjadi *solid solution* antara KNN dan BCZT dimana kation-kation BCZT berdifusi dan mensubstitusi kation-kation KNN.

Analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X dilakukan dengan menggunakan *software* Rietica. Analisis Rietveld ini digunakan untuk mengetahui parameter kisi KNN-BCZT dengan menggunakan model berupa data COD untuk KNN yang diperoleh dari situs *crystallography.net*. Analisa dengan menggunakan Rietica ini menghasilkan kristal perovskite tetragonal seperti pada tabel 4.3:

Tabel 4.3. Parameter Kisi KNN-BCZT Dari Pola Difraksi Sinar-X KNN-BCZT Dengan Menggunakan Metode Rietveld

Parameter	Nilai
Parameter kisi	a: 3,9873 Å ± 0,0023
	c: 3,9857 Å ± 0,0006
Volume kisi	63,3698 Å ³ ± 0,0531
R _p	15,39 %
R _{wp}	11,26 %
GoF	0,4342 %
R _B	0,43

Nilai R_p, R_{wp} dan GoF menunjukkan hasil yang masih dapat diterima (R_p < 20; R_{wp} < 20; GoF atau χ < 4). Dengan demikian, terdapat kesesuaian KNaNbO₃ sintesis dengan model acuan.

BAB V

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian yang didapatkan pada Sintesis Material Piezoelektrik bebas timba $1-x$ KNN-(1-x)BCZT Dengan Metode Reaksi Padat ini, maka diambil beberapa kesimpulan sebagai berikut:

1. Material KNaNbO_3 dengan struktur perovskite tetragonal terbentuk pada temperatur 700°C dengan parameter kisi a: $3.9587\text{\AA} \pm 0,0022$; c: $4.0136\text{\AA} \pm 0,0022$
2. Material BaCaZrTiO_3 dengan struktur perovskite orthorombic terbentuk pada temperatur 1200°C dengan parameter kisi a: $5.2614\text{\AA} \pm 0,0088$; b: $5.8048\text{\AA} \pm 0,0044$; c: $7.9454\text{\AA} \pm 0,0035$
3. Material $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$ terbentuk dengan komposisi $x=80\%$ mol
4. Rekalsinasi material $0,8\text{KNN}-0,2\text{BCZT}$ pada temperatur 1250°C mampu menghasilkan fasa tunggal ABO_3 dengan A= K, Na, Ba dan Ca sedangkan B= Nb, Zr dan Ti.



“Halaman ini sengaja dikosongkan”

DAFTAR PUSTAKA

- Barsoum, M. W. 2003. *Fundamentals Of Ceramics*. Institute Of Physics Publishing: Bristol and Philadelphia
- Budiman dan Dwi Asmi. Sintesis Keramik Kalsium Silikat Menggunakan Kalsium Karbonat (CaCO_3) Dan Silikon Dioksida (SiO_2) dengan Teknik Reaksi Padatan Pada Suhu Sintering 1200°C . Jurnal Teori Dan Aplikasi Fisika Vol. 1 No.1 (2012, Januari) .
- Christianto, Puguh&Purwaningsih, Hariyati. 2013. Analisa Rietveld terhadap Transformasi Fasa ($\alpha \rightarrow \beta$) pada Solid Solution Ti-3 at.% Al pada Proses Mechanical Alloying dengan Variasi Milling Time. *JURNAL TEKNIK POMITS* Vol.2, No.1, (2013) ISSN: 2337-3539 (2301-9271 Print)
- Hongliang Du, dkk. "Influence Of Sintering Temperature On Piezoelectric Properties Of $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3\text{-LiNbO}_3$ ". *Materials Research Bulletin* Vol. 42 (Available 2007, January) 1594-1601.
- <http://www.google.id/strukturkristalperovskite>
- J. Qiu, et. al. (K,Na) NbO_3 -based Lead-free Piezoelectric Ceramics manufactured By Two-Step Sintering. *Ceramics International* Vol. 38 (2012) 2521-2527.
- J. Taub, L. Ramajo dan M.S Castro. Phase Structure And Piezoelectric Properties Of Ca- And Ba-doped $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ Lead-free Ceramics. *Ceramics International*. Available at www.sciencedirect.com accepted 8 October 2012.
- J. Teller et. al. Crystal Structure and Phase Transition Of Sodium Potassium Niobate Perovskite. *Solid State Science* Vol. 11 (2009) 320-324.
- Ke Wang dan Jing-Feng Li. "(K,Na) NbO_3 Based Lead Free Piezoceramics: Phase Transition, Sintering And

Property Enhancement". Journal Of Advanced Ceramics Vol. 1 (2012) 24-37 ISSN: 2226-4108.

Mardiyanto dan Syahfandi Ahda. Strukturmikro Bahan Piezoelektrik Bebas Timbal Bismuth Natrium Titanat-Barium Titanat-Kalium Natrium Niobate Hasil Sintesis Dengan Metode Reaksi Padat. Jurnal Sains Materi Indonesia. Akreditasi LIPI Nomor : 452/D/2010 Tanggal 6 Mei 2010.

Saito, Y. et. al. Nature Vol. 32, www.nature.com. Nature Publishing Group. Vol. 432 (2004, Nov) 84-87.

Supattra Wongsanmai, Supon Ananta dan Rattikorn Yimnirum. *Effect Of Li Addition On Phase Behavior And Electrical Properties Of $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$ Lead Free Ceramics.* Ceramics International Vol. 38 (2012) 147-152.

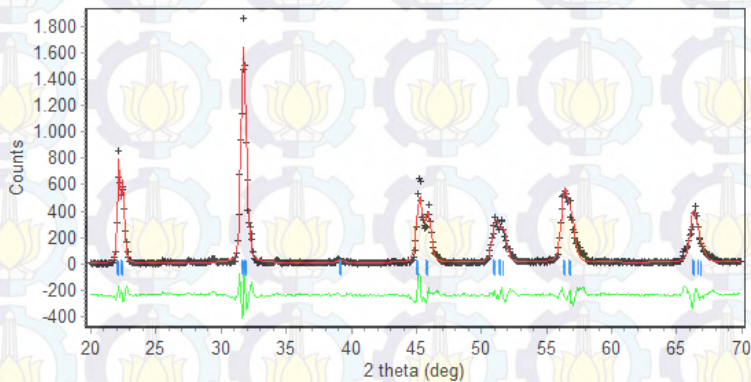
Wei Li, et. al. *High Piezoelectric D33 Coefficient Of Lead-Free $(Ba_{0.93}Ca_{0.07})(Ti_{0.95}Zr_{0.05})O_3$ Ceramics Sintered At Optimal Temperature.* Material Science And Engineering B Vol. 176 (2011) 65-67.

Wilkinson, A. P. "Solid State Synthetic Methode". CHEM 6128 (2001, Macht).

Wismogroho, Agus Sukarto. Pengembangan Dilatometer Untuk Analisis Karakteristik Sintering Magnet Berbasis Ferrite. Prosiding Pertemuan ilmiah XXVII HFI Jateng & DIY (2013, Maret) ISSN: 0853-0823.

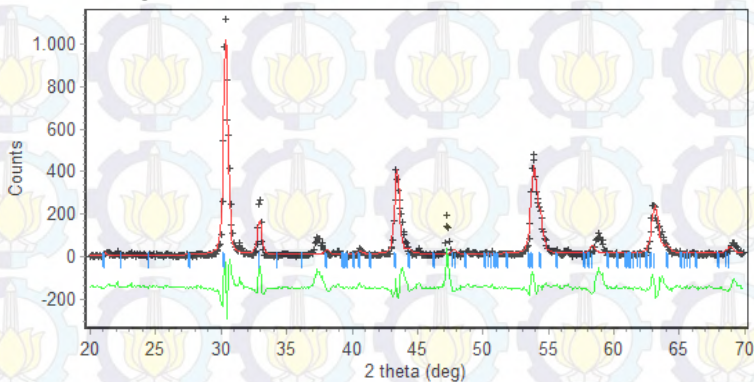
LAMPIRAN

1. Hasil analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X KNN dengan metode rietveld



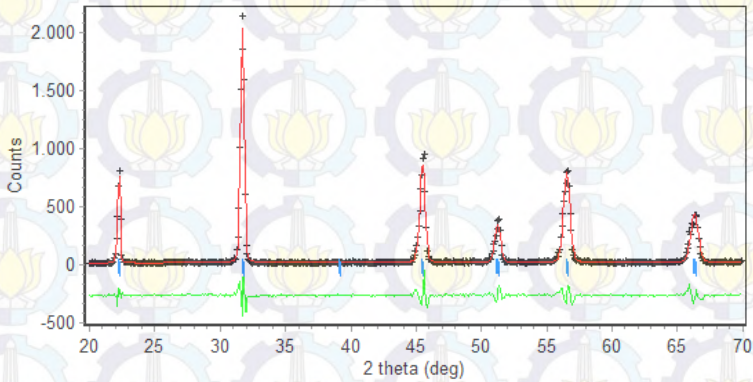
Gambar 1. Hasil Refinement Pola Difraksi Sinar-X KNN Dengan Metode Rietveld

2. Hasil analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X BCZT dengan metode rietveld



Gambar 2. Hasil Refinement Pola Difraksi Sinar-X BCZT dengan Metode Rietveld

3. Hasil analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X KNN-BCZT dengan metode rietveld



Gambar3. Hasil Refinement Pola Difraksi Sinar-X KNN-BCZT Dengan Metode Rietveld

BIODATA PENULIS



Nahariatul Hikmahlahir di Kediri, 23 Agustus 1992. Anak ke-empat dari lima bersaudara dari Bapak Moh. Dawam dan Ibu Sri Suismi. Penulis menempuh pendidikan di TK Dharmawanita Jemekan II, SDN Jemekan II Kab. Kediri, MTs.N Kanigoro Kediri dan MA. Ma'arif Udanawu Blitar. Penulis juga menempuh pendidikan non formal di

Madrasah Miftahul Huda Jemekan. Penulis masuk di Jurusan Fisika ITS pada tahun 2010 melalui jalur PBSB (Penerima Beasiswa Santri Berprestasi). Bidang minat yang ditekuni oleh penulis selama kuliah adalah bidang Fisika Material. Penulis pernah menjadi juara II dalam MTQ se-kecamatan Ringinrejo, Kediri dan mewakili sekolah dalam Olimpiade Bahasa Indonesia pada tahun 2003. Semasa kuliah penulis aktif dalam organisasi ekstra-kampus, CSS MoRA ITS dan Lembaga Dakwah Jurusan Fisika, FOSIF. Penulis sempat aktif sebagai staff Departemen Kesma (Kesejahteraan Mahasantri) CSS MoRA ITS periode 2011/2012, serta Sekretaris dan bendahara Departemen DIKESMA (Edukasi dan kesejahteraan mahasantri) CSS MoRA ITS periode 2012/2013 juga sebagai Sekretaris Divisi Keputrian FOSIF periode 2011/2012. Penulis juga aktif mengikuti seminar, pelatihan dan kepanitiaan kegiatan, antara lain Latihan Ketrampilan Manajemen Mahasiswa pra-Tingkat Dasar (LKMM pra-TD) dan beberapa kali menjadi panitia dalam OSSPEN (Olimpiade Sains Dan Seni Pesantren), serta beberapa lagi yang tidak dapat disebutkan satu per satu. Pada tahun 2013 penulis juga menjadi anggota redaksi majalah ISTIQOMAH. Apabila ingin berdiskusi lebih jauh terkait Tugas Akhir dapat menghubungi penulis melalui : alhikmahsaja@gmail.com.

